

2/19/1 DIALOG(R)File 351:Derwent WPI (c) 2005 Thomson Derwent. All rts.  
reserv.

012532481

WPI Acc No: 1999-338587/199929

Related WPI Acc No: 1999-338586

XRAM Acc No: C99-099752

XRPX Acc No: N99-253769

Hard magnetic samarium-cobalt alloy powder produced cheaply

Patent Assignee: INST FESTKOERPER & WERKSTOFFORSCHUNG (FEST-N)

Inventor: GUTFLEISCH O; KUBIS M; SCHULTZ L; GEBEL B; HANDSTEIN A; HARRIS I  
R; MUELLER K; HARRIS I

Number of Countries: 021 Number of Patents: 008

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
DE 19751367	A1	19990602	DE 1051367	A	19971120	199929 B
WO 9927544	A1	19990603	WO 98EP7418	A	19981119	199929
EP 1032940	A1	20000906	EP 98956933	A	19981119	200044
			WO 98EP7418	A	19981119	
EP 1032940	B1	20010912	EP 98956933	A	19981119	200155
			WO 98EP7418	A	19981119	
DE 59801474	G	20011018	DE 501474	A	19981119	200169
			EP 98956933	A	19981119	
			WO 98EP7418	A	19981119	
JP 2001524604	W	20011204	WO 98EP7418	A	19981119	200203
			JP 2000522596	A	19981119	
US 6352597	B1	20020305	WO 98EP7418	A	19981119	200224
			US 2000554841	A	20000714	
DE 19751367	C2	20020627	DE 1051367	A	19971120	200244

Priority Applications (No Type Date): DE 1051367 A 19971120; DE 1051366 A 19971120

Patent Details:

Patent No Kind Lan Pg Main IPC Filing Notes

DE 19751367 A1 2 H01F-001/059

WO 9927544 A1 G H01F-001/055

Designated States (National): JP US

**THIS PAGE IS BLANK**

Designated States (Regional): AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU  
MC NL PT SE

EP 1032940 A1 G H01F-001/055 Based on patent WO 9927544

Designated States (Regional): CH DE DK FI FR GB LI SE

EP 1032940 B1 G H01F-001/055 Based on patent WO 9927544

Designated States (Regional): CH DE DK FI FR GB LI SE

DE 59801474 G H01F-001/055 Based on patent EP 1032940  
Based on patent WO 9927544

JP 2001524604 W 12 B22F-009/04 Based on patent WO 9927544

US 6352597 B1 H01F-001/06 Based on patent WO 9927544

DE 19751367 C2 H01F-001/055

Abstract (Basic): DE 19751367 A1

NOVELTY - A hard magnetic samarium-cobalt alloy powder is produced  
intensive fine grinding of a starting alloy powder and  
disproportionation in a hydrogen atmosphere and then hydrogen  
desorption heat treatment.

DETAILED DESCRIPTION - A hard magnetic samarium-cobalt alloy powder  
is produced by:

- (a) mixing the individual and/or pre-alloyed alloying element  
powders to form a starting powder;
- (b) subjecting the starting powder to intensive fine grinding and  
disproportionation in a hydrogen atmosphere at above 0.15 MPa at 50-500  
degrees for 1-100 hr.; and
- (c) carrying out a hydrogen desorption heat treatment at 500-900  
degrees .

Preferred Alloy: The starting alloy powder has the composition  
 $\text{Sm}_x\text{Co}_{100-x}$  or  $\text{Sm}_x\text{Co}_{100-x-a-b-c}\text{Fe}_a\text{Cu}_b\text{Zr}_c$ , where  $x=10$  to 30 exclusive,  $a$   
is less than 45,  $b$  is less than 15 and  $c$  is less than 15.

USE - For production of sintered, hot pressed or resin-bonded high  
coercive strength permanent magnets.

ADVANTAGE - The process provides improved magnetic properties at  
low cost.

pp; 2 DwgNo 0/0

Title Terms: HARD; MAGNETIC; SAMARIUM; COBALT; ALLOY; POWDER; PRODUCE;  
CHEAP

Derwent Class: L03; M22; M26; P53; V02

**THIS PAGE IS BLANK**

International Patent Class (Main): B22F-009/04; H01F-001/055; H01F-001/059;  
H01F-001/06

International Patent Class (Additional): B22F-001/00; B22F-009/00;  
C22C-033/02

File Segment: CPI; EPI; EngPI

Manual Codes (CPI/A-N): L03-B02A5; M22-H02; M26-B08; M26-B08X

Manual Codes (EPI/S-X): V02-A01A1; V02-A01A9

Derwent Registry Numbers: 1532-U

Derwent WPI (Dialog® File 351): (c) 2005 Thomson Derwent. All rights reserved.

---

© 2005 Dialog, a Thomson business

**THIS PAGE IS BLANK**



①9 **BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**  
⑩ **DE 197 51 367 A 1**

⑤① Int. Cl. 6:  
**H 01 F 1/059**  
B 22 F 1/00

*H 01 F 1/059*

⑲ Aktenzeichen: 197 51 367.0  
⑳ Anmeldetag: 20. 11. 97  
㉑ Offenlegungstag: 2. 6. 99

**DE 197 51 367 A 1**

⑦① Anmelder:  
Institut für Festkörper- und Werkstofforschung  
Dresden e.V., 01069 Dresden, DE

⑦② Erfinder:  
Gutfleisch, Oliver, Dr., Birmingham, GB; Kubis,  
Michael, 01187 Dresden, DE; Schültz, Ludwig, Prof.  
Dr., 01109 Dresden, DE

⑤⑥ Entgegenhaltungen:

DE-OS	28 16 538
CH	5 60 955
US	55 80 396
EP	03 04 054 A2

GB-Buch: Rare-Earth Permanent Magnets, ed.  
J.M.D.  
Coey, Oxford 1996, S. 346-349 und 370-380;

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤④ Verfahren zur Herstellung eines hartmagnetischen, aus einer Samarium-Kobalt-Basis-Legierung bestehenden Pulvers

⑤⑦ Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der metallurgischen Verfahrenstechnik und betrifft die Herstellung eines hartmagnetischen, aus einer Samarium-Kobalt-Basis-Legierung bestehenden Pulvers.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zu schaffen, das eine technologisch beherrschbare und kostengünstige Herstellung solcher Pulver für hochkoerzitive Permanentmagnete ermöglicht.

Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß man

a) die einzelnen Elemente der Legierung in Pulverform und/oder eine oder mehrere pulverförmige Vorlegierungen zu einem Ausgangspulver miteinander vermischt,

b) diese Pulvermischung bei einer Temperatur im Bereich von 50°C bis 500°C in einer Wasserstoffatmosphäre bei einem Wasserstoffdruck von > 0,15 MPa während einer Dauer von 1 h bis 100 h einer intensiven Feinmahlung unterwirft, wobei das Pulver hydriert und disproportioniert wird, und

c) danach an dem so erhaltenen Feinpulver mittels einer Wärmebehandlung im Bereich von 500°C bis 900°C eine Wasserstoffdesorptionsbehandlung durchführt.

Mit dem erfindungsgemäßen Pulver können hochkoerzitive Permanentmagnete durch Sintern, Heißkompaktierung oder Kunststoffbindung hergestellt werden.

**DE 197 51 367 A 1**

## Beschreibung

Die Erfindung bezieht sich auf das Gebiet der metallurgischen Verfahrenstechnik und betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines hartmagnetischen, aus einer Samarium-Kobalt-Basis-Legierung bestehenden Pulvers. Mit dem Pulver können hochkoerzitive Permanentmagnete durch Sintern, Heißkompaktierung oder Kunststoffbindung hergestellt werden.

Permanentmagnete auf Sm-Co-Basis werden bisher vorwiegend auf pulvermetallurgischen Wege durch Sintern hergestellt (K. Strnat and R. M. W. Strnat, J. Magn. Magn. Mater. 100 (1991) 38). Zur Herstellung des dafür benötigten Sm-Co-Pulvers ist es bereits bekannt, zunächst eine entsprechende Legierung zu erschmelzen, diese nach dem Erstarren zu zerkleinern und in einem Passivierungsgas unterhalb der Phasentransformationstemperatur der Legierung wärmezu behandeln (US 5 122 203). Eine derartige Herstellungsweise hat den Nachteil, daß eine energie- und zeitaufwendige mehrstufige Wärmebehandlung notwendig ist, um hohe Koerzitivfeldstärken einzustellen. Desweiteren hat eine derartige Herstellungsweise den Nachteil, daß für Magnete des  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ -Typs Additive wie Cu und Zr notwendig sind, um eine Mikrostruktur einzustellen, die eine hohe Koerzitivfeldstärke durch den Pinning-Mechanismus ermöglicht. Diese Additive verringern jedoch die Sättigungsmagnetisierung.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zu schaffen, das eine technologisch beherrschbare und kostengünstige Herstellung eines hartmagnetischen, aus einer Samarium-Kobalt-Basis-Legierung bestehenden Pulvers für hochkoerzitive Permanentmagnete ermöglicht.

Diese Aufgabe wird nach der Erfindung mit dem in den Patentansprüchen beschriebenen Herstellungsverfahren gelöst.

Das Verfahren ist dadurch gekennzeichnet, daß man

- a) die einzelnen Elemente der Legierung in Pulverform und/oder eine oder mehrere pulverförmige Vorlegierungen zu einem Ausgangspulver miteinander vermischt,
- b) diese Pulvermischung bei einer Temperatur im Bereich von 50°C bis 500°C in einer Wasserstoffatmosphäre bei einem Wasserstoffdruck von >0,15 MPa während einer Dauer von 1 h bis 100 h einer intensiven Feinmahlung unterwirft, wobei das Pulver hydriert und disproportioniert wird, und
- c) danach an dem so erhaltenen Feinpulver mittels einer Wärmebehandlung im Bereich von 500°C bis 900°C eine Wasserstoffdesorptionsbehandlung durchführt.

Gemäß einer vorteilhaften Ausgestaltung der Erfindung wird die Pulvermischung bei einem Wasserstoffdruck im Bereich von vorzugsweise 0,5 MPa bis 2,5 MPa feingemahlen und disproportioniert.

Entsprechend weiterer Ausgestaltungen der Erfindung werden in der Verfahrensstufe a) zweckmäßigerweise solche Ausgangspulvermischungen eingesetzt, die Legierungen mit der Zusammensetzung  $\text{Sm}_x\text{Co}_{100-x}$  mit  $10 < x < 30$  oder der Zusammensetzung  $\text{Sm}_x\text{Co}_{100-x-a-b-c}\text{Fe}_a\text{Cu}_b\text{Zr}_c$  mit  $10 < x < 30$ ,  $a < 45$ ,  $b < 15$  und  $c < 15$  ergeben.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren wird eine neue Möglichkeit für die magnetische Härtung von Sm-Co-Basis-Verbindungen geschaffen. Durch das Verfahren ergeben sich neue Ansätze für eine Optimierung der magnetischen Eigenschaften von Sm-Co-Magneten, die zu einer Verbesserung der Eigenschaften führt und eine kostengünstige Alternative

für die Herstellung solcher Magnete darstellt.

Nachstehend ist die Erfindung an Hand eines Ausführungsbeispiels näher erläutert.

Eine erschmolzene  $\text{Sm}_2(\text{Co,Fe,Cu,Zr})_{17}$ -Ausgangslegierung, wie sie üblicherweise für die Herstellung von Sm-Co-Sintermagneten verwendet wird und deren Koerzitivfeldstärken durch den Pinning-Mechanismus bestimmt werden, wird bis auf Partikelgrößen kleiner 160 nm zerkleinert und anschließend mit Hilfe einer Vibrationsmühle in einer Wasserstoffatmosphäre von 1 MPa bei einer Temperatur des Mahlbeckers von 350°C während einer Dauer von 20 h intensiv gemahlen. Hierbei findet neben einer Feinmahlung gleichzeitig infolge des anwesenden Wasserstoffs eine Disproportionierung der Legierung statt. Anschließend wird das Pulver zur Durchführung einer Wasserstoffdesorption unter ständigem Abpumpen von Wasserstoff bis auf 750°C aufgeheizt und bei dieser Temperatur eine halbe Stunde gehalten.

Das auf diese Weise hergestellte Pulver weist eine hohe Koerzitivfeldstärke  $H_c$  von etwa 10 kA/cm auf und kann zu leistungsfähigen Permanentmagneten verarbeitet werden.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung eines hartmagnetischen, aus einer Samarium-Kobalt-Basis-Legierung bestehenden Pulvers, dadurch gekennzeichnet, daß man

- a) die einzelnen Elemente der Legierung in Pulverform und/oder eine oder mehrere pulverförmige Vorlegierungen zu einem Ausgangspulver miteinander vermischt,
- b) diese Pulvermischung bei einer Temperatur im Bereich von 50°C bis 500°C in einer Wasserstoffatmosphäre bei einem Wasserstoffdruck von >0,15 MPa während einer Dauer von 1 h bis 100 h einer intensiven Feinmahlung und Disproportionierung unterwirft und
- c) danach an dem so erhaltenen Feinpulver mittels einer Wärmebehandlung im Bereich von 500°C bis 900°C eine Wasserstoffdesorptionsbehandlung durchführt.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Pulvermischung bei einem Wasserstoffdruck im Bereich von 0,5 MPa bis 2,5 MPa feingemahlen und disproportioniert wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man in der Verfahrensstufe a) eine Ausgangspulvermischung für eine Legierung mit der Zusammensetzung  $\text{Sm}_x\text{Co}_{100-x}$  ( $10 < x < 30$ ) herstellt.

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man in der Verfahrensstufe a) eine Ausgangspulvermischung für eine Legierung mit der Zusammensetzung  $\text{Sm}_x\text{Co}_{100-x-a-b-c}\text{Fe}_a\text{Cu}_b\text{Zr}_c$  mit  $10 < x < 30$ ,  $a < 45$ ,  $b < 15$  und  $c < 15$  herstellt.